



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant: Masatoshi IIO et al.
Title: FUEL CELL POWER PLANT
Appl. No.: Unassigned
Filing Date: **AUG 29 2001**
Examiner: Unassigned
Art Unit: Unassigned

*10-2-01
JW*

CLAIM FOR CONVENTION PRIORITY

Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application filed in the following foreign country is hereby requested, and the right of priority provided in 35 U.S.C. § 119 is hereby claimed.

In support of this claim, filed herewith is a certified copy of said original foreign application:

- Japanese Patent Application No. 2000-275190 filed September 11, 2000.

Respectfully submitted,

Date **AUG 29 2001**

By *Richard L. Schwaab*

FOLEY & LARDNER
Washington Harbour
3000 K Street, N.W., Suite 500
Washington, D.C. 20007-5109
Telephone: (202) 672-5414
Facsimile: (202) 672-5399

Richard L. Schwaab
Attorney for Applicant
Registration No. 25,479

日 本 国 特 許 庁

JAPAN PATENT OFFICE

p.1052
JC997 U.S. PTO
09/940547
08/29/01

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 9月11日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-275190

出 願 人

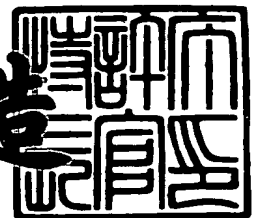
Applicant(s):

日産自動車株式会社

2001年 5月31日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3050518

【書類名】 特許願

【整理番号】 NM00-00063

【提出日】 平成12年 9月11日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/04
C01B 3/38

【発明の名称】 燃料電池装置

【請求項の数】 6

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社
社内

【氏名】 飯尾 雅俊

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社
社内

【氏名】 岩崎 靖和

【特許出願人】

【識別番号】 000003997

【氏名又は名称】 日産自動車株式会社

【代理人】

【識別番号】 100075513

【弁理士】

【氏名又は名称】 後藤 政喜

【選任した代理人】

【識別番号】 100084537

【弁理士】

【氏名又は名称】 松田 嘉夫

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 019839

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9706786

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書
 【発明の名称】 燃料電池装置
 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

改質用燃料から水素を含む改質ガスを発生させる改質反応器と、改質ガス中の水素を選択的に分離する水素分離膜および水素分離膜 2 次側の水素リッチガスと空気供給装置から供給される圧縮空気とにより発電する燃料電池を有し、燃料電池の水素極側排出ガスの一部または全部を燃料電池の入口に供給する水素循環流路を形成した燃料電池装置において、

前記水素循環流路の水素濃度もしくは水素分圧を検知する水素量検知手段と、

前記水素分離膜 2 次側のスイープガスとなる圧縮空気を導入する空気導入手段と、

前記水素循環流路内のガスを排出する水素排出手段と、

前記検知した水素量に応じて水素循環流路内への圧縮空気の導入と水素循環流路からのガスの排出を制御する制御手段とを備えた燃料電池装置。

【請求項 2】

請求項 1 の燃料電池装置において、水素量検知手段として、窒素、一酸化炭素、二酸化炭素等の空気中に含まれる酸素以外のガス濃度を検出するガス濃度検知器を設け、この検知ガス濃度と空気の代表的な組成から、水素循環流路に残存する水素以外のガス量および水素循環流路内の水素分圧を算出し、この算出結果に基づいて水素循環流路内の水素分圧を制御するように制御手段を構成した燃料電池装置。

【請求項 3】

請求項 1 の燃料電池装置において、燃料電池の水素極側排出ガスの一部または全量を空気と混合して燃焼させる燃焼器を備え、この燃焼器の燃焼ガスの一部を水素分離膜 2 次側に供給するようにした燃料電池装置。

【請求項 4】

請求項 1 の燃料電池装置において、水素循環流路から水素分離膜 2 次側への空気導入手段として、燃料電池からの排空気を導入する手段を備えた燃料電池装置

【請求項 5】

請求項 1 の燃料電池装置において、水素分離膜 2 次側から燃料電池水素極側に連通する水素流路に空気を導入するように空気導入手段を設けた燃料電池装置。

【請求項 6】

請求項 1 の燃料電池装置において、空気導入手段としてコンプレッサからの圧縮空気を導入・遮断するバルブを、水素排出手段として水素循環流路からのガスを排出・遮断する排出バルブを、それぞれ設けた燃料電池装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は改質反応器を備えた燃料電池装置に関する。

【0002】

【従来の技術と解決すべき課題】

水素分離膜を用いた燃料電池装置として、水素分離膜 2 次側に純度の高い水素リッチガスが透過することを利用し、燃料電池排出水素を水素分離膜透過水素と混合して、再度燃料電池入口へ供給する水素循環流路を設けたものが知られている。この種の燃料電池装置では、水素分離膜 2 次側の水素分圧が高いので、水素を透過させるには分離膜 1 次側の圧力を高くすることで水素分離膜に加わる水素分圧差を大きくする必要がある。

【0003】

たとえば、水蒸気改質反応器を改質器として適用した構成において、反応器の運転圧力が 10.0 (単位は atm。以下同様。) のときの計算例をあげると、改質ガスが透過した水素分離膜 2 次側では、圧力を 2.5 としても水素分圧は 1.93 程度である。また、水蒸気改質反応器の代わりに、部分酸化と水蒸気改質が同時並行的に進行する ATR 反応器や PROX 反応器 (いわゆる CO 選択酸化反応器) を改質反応器に用いた場合においては、改質反応器の運転圧力を 2.5 とした場合、水素分離膜 1 次側での水素分圧は 1.98 であるのに対して水素分離膜 2 次側での水素分圧は 1.95 となり、分圧差は小さく、このため燃料電池運転に十分な量の水素透過

量は期待できない。この対策として、水素分離膜 1 次側での水素分圧を高くするために運転圧力を高くすると、反応器に導入する空気圧力を反応器内圧より高くしなければならないため、空気圧縮機の負荷が大きくなり、燃料電池システムとしての効率が低下してしまう。

【0004】

また、特開平11-116202公報には、水素分離膜の 2 次側に水蒸気あるいは窒素ガスをスイープガスとして供給することにより水素分離膜 2 次側の水素分圧を低下させ、これにより水素分離膜に加わる水素分圧を高められるようにしたものが開示されている。しかしながら、この装置ではガス発生のためのエネルギー分だけ効率が低下する他、特に燃料電池自動車のような移動体用燃料電池システムでは、ガス発生装置または充填タンク等の付加的な設備の搭載が車両レイアウト上困難であるという問題も生じる。本発明はこのような従来の問題点を解消することを目的としている。

【0005】

【課題を解決するための手段】

第 1 の発明は、改質用燃料から水素を含む改質ガスを発生させる改質反応器と、改質ガス中の水素を選択的に分離する水素分離膜および水素分離膜 2 次側の水素リッチガスと空気供給装置から供給される圧縮空気とにより発電する燃料電池を有し、燃料電池の水素極側排出ガスの一部または全部を燃料電池の入口に供給する水素循環流路を形成した燃料電池装置において、前記水素循環流路の水素濃度もしくは水素分圧を検知する水素量検知手段と、前記水素分離膜 2 次側のスイープガスとなる圧縮空気を導入する空気導入手段と、前記水素循環流路内のガスを排出する水素排出手段と、前記検知した水素量に応じて水素循環流路内への圧縮空気の導入と水素循環流路からのガスの排出を制御する制御手段とを備える。

【0006】

第 2 の発明は、前記第 1 の発明において、水素量検知手段として、窒素、一酸化炭素、二酸化炭素等の空気中に含まれる酸素以外のガス濃度を検出するガス濃度検知器を設け、この検知ガス濃度と空気の代表的な組成から、水素循環流路に残存する水素以外のガス量および水素循環流路内の水素分圧を算出し、この算出

結果に基づいて水素循環流路内の水素分圧を制御するように制御手段を構成する。

【 0 0 0 7 】

第 3 の発明は、前記第 1 の発明において、燃料電池の水素極側排出ガスの一部または全量を空気と混合して燃焼させる燃焼器を備え、この燃焼器の燃焼ガスの一部を水素分離膜 2 次側に供給するように図る。

【 0 0 0 8 】

第 4 の発明は、前記第 1 の発明において、水素循環流路から水素分離膜 2 次側への空気導入手段として、燃料電池からの排空気を導入する手段を備える。

【 0 0 0 9 】

第 5 の発明は、前記第 1 の発明において、水素分離膜 2 次側から燃料電池水素極側に連通する水素流路に空気を導入するように空気導入手段を設ける。

【 0 0 1 0 】

第 6 の発明は、前記第 1 の発明において、空気導入手段としてコンプレッサからの圧縮空気を導入・遮断するバルブを、水素排出手段として水素循環流路からのガスを排出・遮断する排出バルブを、それぞれ設ける。

【 0 0 1 1 】

【作用・効果】

第 1 の発明以下の各発明によれば、検知水素量に応じて水素分離膜 2 次側に空気を導入するようにしたことから、次のような効果が得られる。

・水蒸気発生装置や窒素充填ポンペを備えることなく、水素分離膜 2 次側にスリープガスを供給することが可能となり、水素分離膜 2 次側の水素分圧を低下させることができ、水素透過量を増大させることができる。よって、必要とする水素透過量が同一であればそれだけ水素分離膜面積を小さくすることができるので、コストを低減できるばかりか、燃料電池の起動・停止の際に水素分離膜を加熱・冷却する時間を短くすることができる。また同じ水素透過量を得るための水素分離膜 1 次側の改質ガス圧力を小さくすることができるため、特に P R O X 反応器や A T R 反応器を改質反応器に用いた場合において、空気圧力を小さくすることが可能となり、空気圧縮機の負荷を小さくし、システム効率を向上させることが

できる。

・水素センサによる濃度測定により、水素循環流路内の水素濃度を所定の濃度以上に管理できるため、循環ガス流量の増大による水素循環ポンプの負荷を抑えることができる。

【 0 0 1 2 】

なお、第 6 の発明として示したように、水素分離膜 2 次側に空気導入する手段としてはコンプレッサによる圧縮空気を導入または遮断するバルブを、水素循環流路からの水素排出手段としては流路からのガスを排出または遮断する排出バルブを、それぞれ設けた構成とすることができる。

【 0 0 1 3 】

第 2 の発明によれば、酸素以外のガス濃度の検出結果に基づいて算出した水素分圧により水素循環流路内の水素分圧を制御するようにしたことから、次のような効果が得られる。

・水素センサの代わりに、窒素センサ、一酸化炭素または、二酸化炭素センサ等を用いるため、比較的濃度の低いガス濃度を検知でき、濃度変化を捉えやすいため、水素分圧の制御が容易になる。

・一酸化炭素センサを用いた場合は、一酸化炭素による燃料電池の被毒防止を検知するセンサと共用することができる。

【 0 0 1 4 】

さらに、第 3 の発明によれば、燃焼ガスの一部を水素分離膜の 2 次側に導入する構成としたことから、必要な水素分圧に短時間で到達することができるという効果が得られる。

【 0 0 1 5 】

第 4 の発明によれば、燃料電池排空気の一部を水素分離膜の 2 次側に導入するようにしたことから、次のような効果が得られる。

・水素循環流路への空気導入時に生じる燃料電池への空気導入量の変動が少なく、安定した運転性能が得られる。

・燃料電池の排空気中に含まれる水蒸気により、水素分離膜 2 次側の水素分圧をさらに低下させることができる。

【 0 0 1 6 】

第 5 の発明によれば、空気導入位置が水素循環流路において水素分離膜 2 次側より下流に位置することから、蒸発器出口の燃焼ガス等の水素分離膜が水素脆化を生じる温度以下のガスを、水素循環流路に導入に用いる場合においても加熱ヒーターを設ける必要がなくなる。

【 0 0 1 7 】

【発明の実施の形態】

次に本発明の実施形態を図面に基づいて説明する。図 1 または図 2 は、本発明の第 1 の実施形態を示している。構成を説明すると、この燃料電池装置は、アルコールやガソリン等の液体燃料からなる改質用燃料から水素を含む改質ガスを発生させる改質反応器 4 と、改質ガス中の水素を選択的に分離する水素分離膜 1 1、および水素分離膜 2 次側 1 1 - 2 の水素リッチガスとコンプレッサ 7 からの圧縮空気が導入される燃料電池 2 と、燃料電池 2 の水素極側排出ガスの一部または全量を水素分離膜の 2 次側 1 1 - 2 に供給する水素循環流路 8 を備える。

【 0 0 1 8 】

前記水素循環流路 8 の燃料電池 2 下流で水素分離膜 2 次側に対して上流となる位置には、コンプレッサ 7 から圧縮空気を導入する流路 2 0 を備える。この空気導入流路 2 0 には、空気の導入または遮断を行うバルブ 3 0 が介装される。

【 0 0 1 9 】

水素循環流路 8 には、水素量検出手段として、水素濃度が検知可能な水素センサ 4 0 を設け、この水素センサ 4 0 の出力により、水素が所定の濃度より高くなったことを検知した場合には、空気導入流路 2 0 より、燃料電池 2 の電極にて酸化反応により消費できる流量以下で、圧縮空気を流入させる。水素濃度が低くなったことを検知した場合には、水素排出手段として機能する排出バルブ 6 0 を開放することにより、水素循環流路 8 内のガスの一部を燃焼器 1 に流出させる。この流入量は、図示しない絞りまたは空気流量調整弁により上記所定流量以下に調整される。

【 0 0 2 0 】

なお、図において 1 0 はマイクロコンピュータ等から構成される制御手段とし

てのコントローラ、12はクーラー、13は加湿器、14はコンデンサである。
 コントローラ10は、前述した通り水素濃度に基づいてバルブ30および排出バルブ60の開閉を制御する。また、図1は改質器として水蒸気改質器を、図2は同じくATR反応器を、それぞれ適用した点で異なり、他の構成は実質的に同一である。

【0021】

このようにして、水素分離膜2次側11-2の循環流路8に空気を導入することにより、水素分離膜2次側11-2の水素分圧を低くできるので、水素分離膜11を透過する水素流量を大きくできる。表1には、改質器として水蒸気改質器を用いた場合（図1の構成）、表2に改質器としてATRを用いた場合（図2の構成）の水素分離膜1次側11-1（点B）および2次側11-2（点A）、燃料電池2入口（点C）における水素および水の分圧の計算例を示す。

【0022】

【表1】

	点A	点B	点C
H2	0.64	6.32	1.52
H2O	0.57	1.39	0.47
他	1.29	2.29	0.51

【0023】

【表2】

	点A	点B	点C
H2	0.64	1.98	1.52
H2O	0.57	0.27	0.47
他	1.29	0.25	0.51

分圧の計算条件は、スリープガスを用いない場合、既出の計算例と同一であるが、水蒸気改質器の場合で、水素分離膜2次側の水素分圧が1.93から0.64に、A

TR反応器の場合で、水素分圧差が1.93から0.64に減少する。水素の透過流量は、水素の分圧の平方根の1次側と2次側の差に比例するから、水蒸気改質器の場合で、

$$\begin{aligned} & (\text{本発明の水素透過流量}) / (\text{スweep無しの水素透過流量}) \\ & = \{ (6.32)^{0.5} - (1.93)^{0.5} \} / \{ (6.32)^{0.5} - (0.64)^{0.5} \} \\ & \approx 1.52 \end{aligned}$$

となり、約1.5倍の水素透過量が同じ水素分離膜を用いて得られる。

【0024】

よって、透過量の増加分だけ水素分離膜を小型にし、高価なPd等を水素分離膜に用いた場合には、水素分離膜のコストを確実に低減できる。また、水素分離膜の小型化により、燃料電池の起動・停止の際に、水素分離膜を暖めたり、水素分離膜を収装するケース内の水素を除去したり、水素分離膜を冷却したりといった時間を短くすることができる。

【0025】

一方、水素循環流路8に導入された空気中の酸素は、燃料電池2の電極表面における酸化反応に消費されるため、燃料電池出口では、酸素以外の空気中成分である窒素および二酸化炭素が残存し、循環流路内を排出されるまで循環し続ける。よって、燃料電池2電極表面で酸化反応で消費しても燃料電池の耐熱温度を超えない流量で空気を導入したとしても、水素循環流路の水素分圧を十分低下させることができる。

【0026】

また、水素循環流路8に設けた水素センサ40により、水素濃度を検知し、この検知出力に伴いコントローラ10で導入空気の供給・停止を遮断弁31で行いあるいは、排出弁60より排出することで、水素以外のガス成分が増えることで循環流量が増え、燃料電池に必要な水素ストイキ比を循環ポンプの出力で達成できなくなることがないように、水素分圧を管理することができる。

【0027】

図3は本発明の第2の実施形態である。前記第1の実施形態と同一の部分については説明を省略し、異なる部分のみ説明する。この実施形態では、排水素を燃

焼させる燃焼器 1 の下流に液体燃料を蒸発させる蒸発器 3 と、この蒸発器下流の排気の一部を水素循環流路 8 に導く流路を備え、この流路に設けたコントローラ 1 0 の制御により開閉するバルブ 3 1 により、排気の導入と遮断を切り換え可能としている。排気の圧力を水素循環流路内の圧力より高めるため、排気流路には、圧力調整弁 4 0 を設ける。

【 0 0 2 8 】

この実施形態によれば、第 1 の実施形態と同様に、水素循環流路内の水素分圧を低下させることができるため、同じ水素分離膜面積で、水素透過量を増加させることができる。また、排気内の酸素は、燃料器による燃焼反応で消費され、酸素以外の二酸化炭素等の他の成分が多くなっている。そのため、燃料電池で処理可能な酸素最大流量が燃料電池の耐熱温度により決まる場合、同じ酸素量に対して酸素以外の成分が多い排気を導入すれば、水素循環流路 8 内にその分大きな流量で導入することができ、その分必要な水素分圧に短時間で設定することができる。

【 0 0 2 9 】

図 4 は本発明の第 3 の実施形態である。第 1 の実施形態と同一の部分については、説明を省略し、異なる部分のみ説明する。この実施形態では、燃料電池 2 の排空気流路から水素循環流路 8 に導通する流路を設け、この排空気流路に設けたコントローラ 1 0 の制御により開閉するバルブ 3 2 により、排気の導入と遮断を切り換え可能としている。

【 0 0 3 0 】

この実施形態によれば、第 1 の実施形態と同様に、水素循環流路内の水素分圧を低下させることができるため、同じ水素分離膜面積で、水素透過量を増加させることができる。また、燃料電池の排空気をを用いるため、コンプレッサから直接水素循環流路に導入した場合に対して、水素循環流路への空気導入時に生じる燃料電池への空気導入量の変動を減少し、これによるスタック出力変動を抑えることができる。さらに、排空気中に含まれる水蒸気により、水素分離膜 2 次側の水素分圧をさらに低下させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の第 1 の実施形態の構成を示す説明図。

【図 2】

本発明の第 1 の実施形態の構成を示す他の説明図。

【図 3】

本発明の第 2 の実施形態の構成を示す説明図。

【図 4】

本発明の第 3 の実施形態の構成を示す説明図。

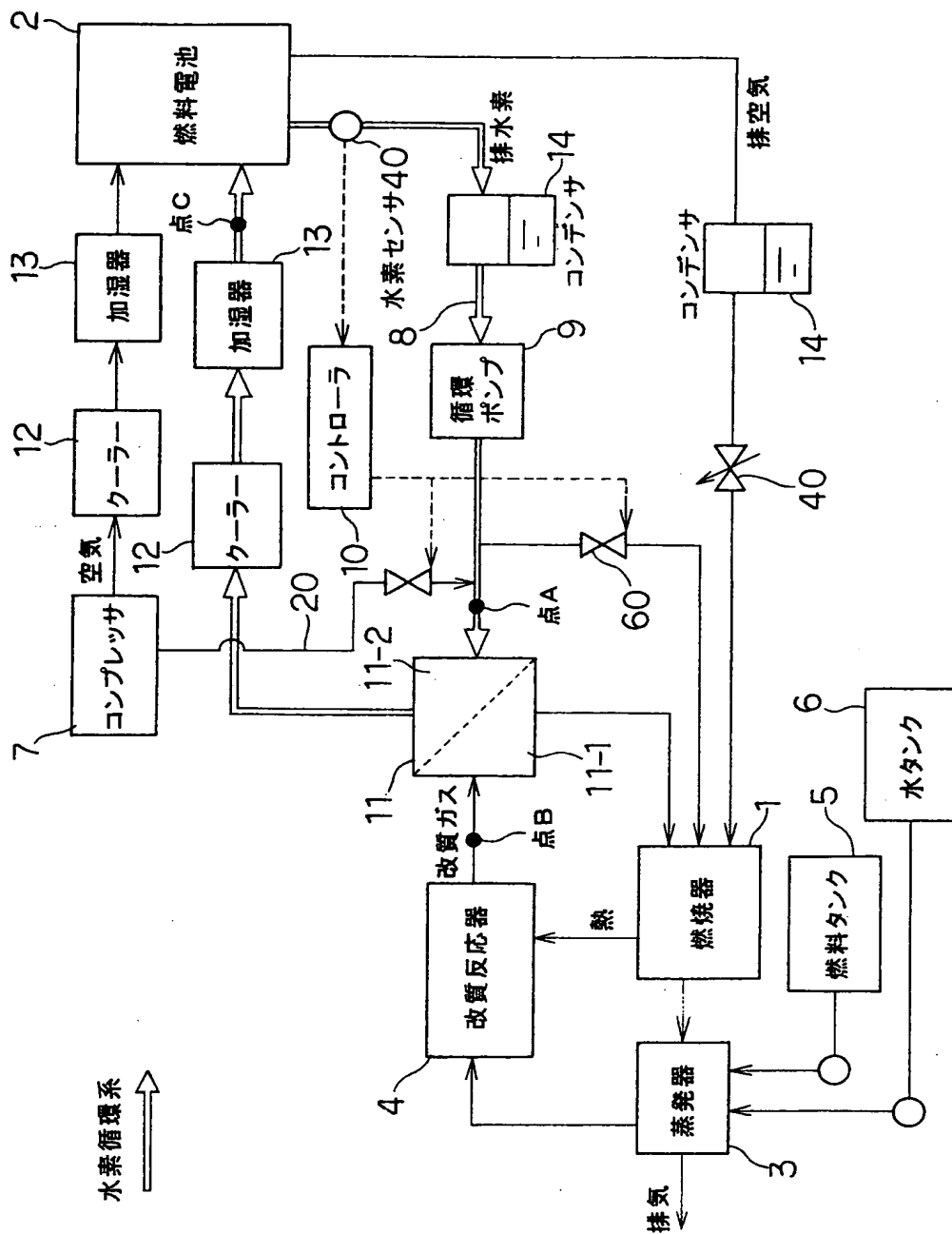
【符号の説明】

- 1 燃焼器
- 2 燃料電池
- 3 蒸発器
- 4 改質反応器
- 5 燃料タンク
- 6 水タンク
- 7 コンプレッサ
- 8 水素循環流路
- 9 水素循環ポンプ
- 10 コントローラ
- 11 水素分離膜
- 11-1 水素分離膜 1 次側
- 11-2 水素分離膜 2 次側
- 20 空気導入流路
- 21 排気導入流路
- 22 排空気導入流路
- 30 バルブ
- 31 バルブ
- 32 バルブ

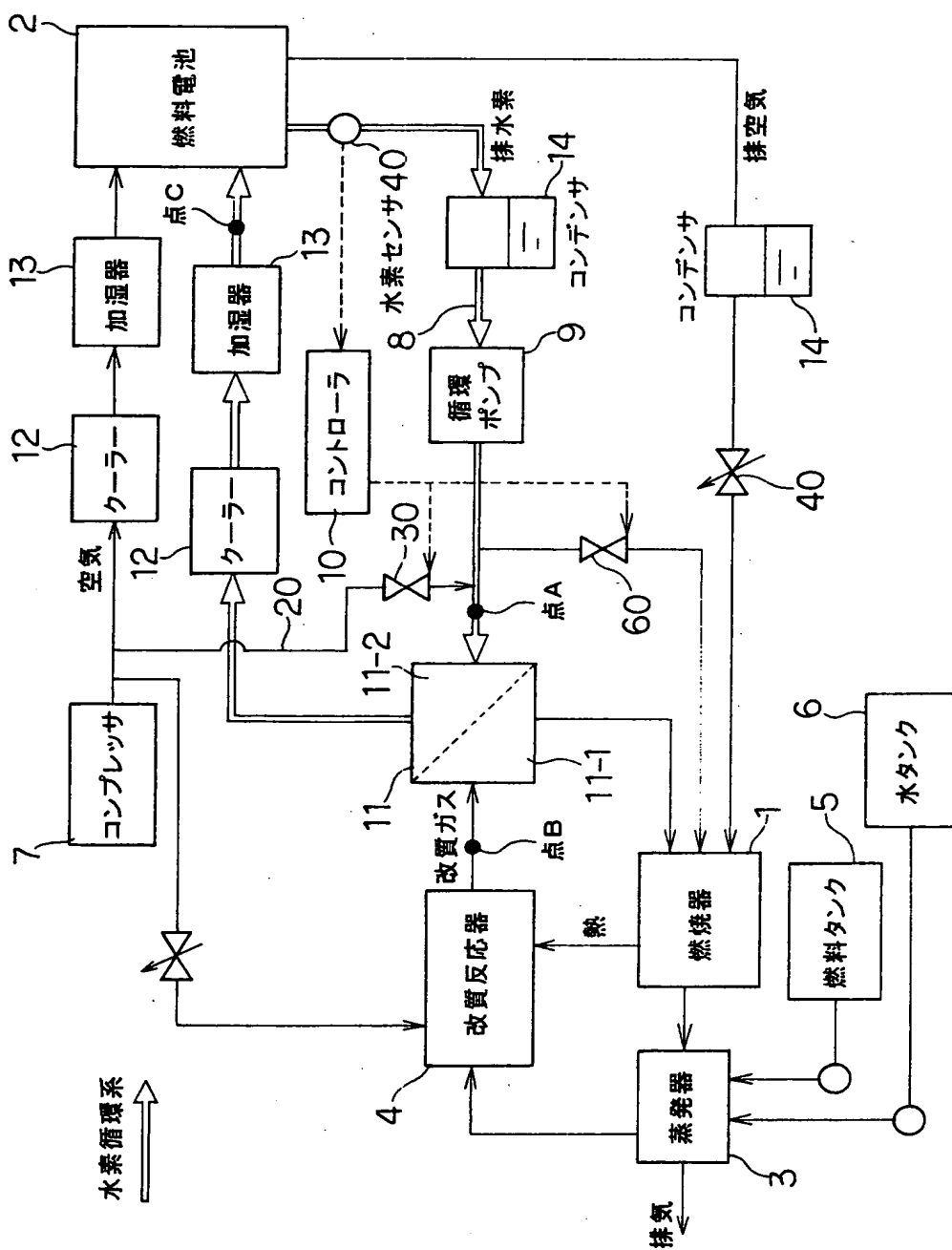
-
- 4 0 圧力調整弁
 - 5 0 水素濃度センサ
 - 6 0 排出バルブ

【書類名】 図面

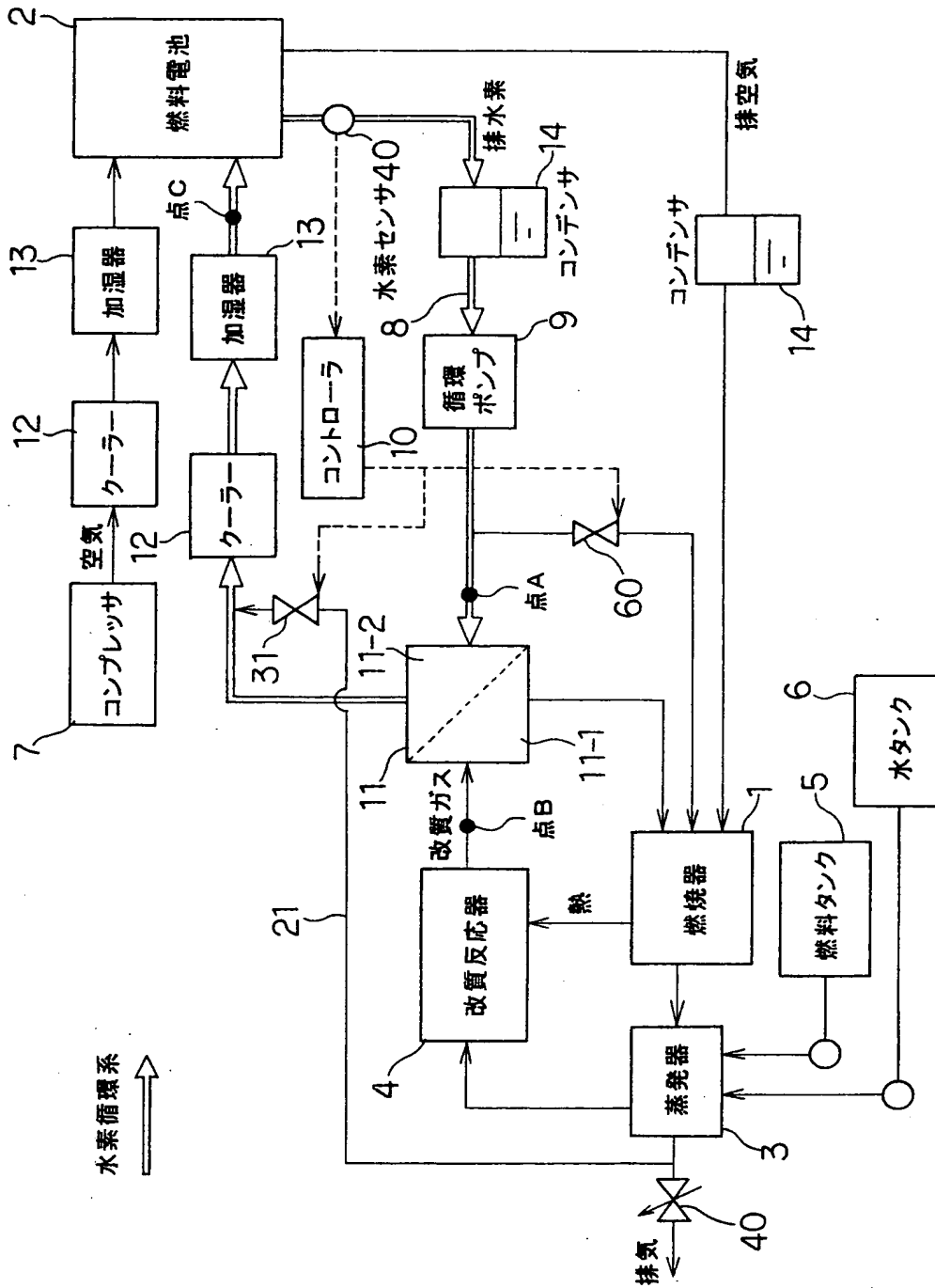
【図 1】



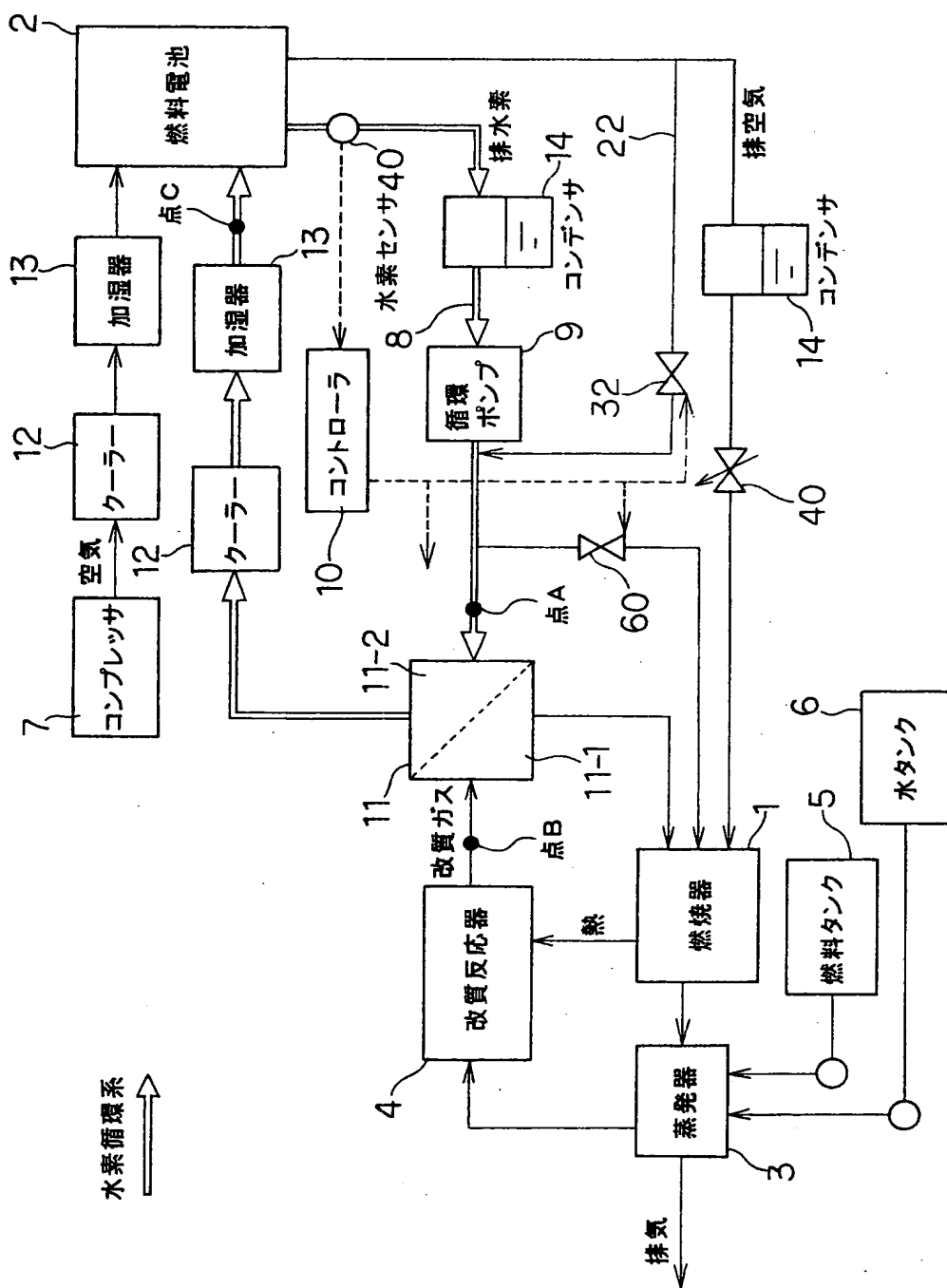
【图2】



【図3】



【図4】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 水素ガスを発生させる改質反応器および水素分離膜を用いた燃料電池装置において、ガス発生装置や充填タンク等の付加的な設備を要することなく、水素分離膜に十分な水素分圧差を発生させて、燃料電池の小型・低コスト化を図る。

【解決手段】 燃料電池 2 の水素極側排出ガスを燃料電池の入口に供給する水素循環流路 8 の水素濃度を検知する水素センサ 4 0 と、水素分離膜 1 1 の 2 次側のスweepガスとなる圧縮空気を導入するバルブ 3 0 と、水素循環流路内のガスを排出する排出弁 6 0 と、検知した水素量に応じてバルブ 3 0 と排出弁 6 0 の開閉を制御するコントローラ 1 0 とを備え、水素分離膜 2 次側にバルブ 3 0 を介してスweepガスを供給して水素分離膜 2 次側の水素分圧を低下させることにより水素分離膜の水素透過量を増大させる。

【選択図】 図 1

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000003997]

1. 変更年月日 1990年 8月31日

[変更理由] 新規登録

住 所 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

氏 名 日産自動車株式会社